

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-172850

(43)Date of publication of application : 26.06.1998

(51)Int.Cl.

H01F 41/02  
C22C 38/00  
H01F 1/053  
H01F 1/06  
H01F 1/08

(21)Application number : 08-352365

(22)Date of filing : 11.12.1996

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD

(72)Inventor : IKEGAMI TAKASHI  
HIROZAWA SATORU

## (54) PRODUCTION OF ANISOTROPIC PERMANENT MAGNET

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To directly make an R-T-M-B-based magnet powder bulk and realize both high magnetic characteristic and excellent temperature dependency, by using an anisotropic magnet powder available for high performance when producing an R-T-M-B-based permanent magnet to obtain high magnetic characteristic.

SOLUTION: In a method for producing an R-T-(M)-B-based permanent magnet, a magnet powder with magnetic anisotropy obtained through hydrogen treatment is crushed into fine powder with average grain size of 10 to 40 $\mu$ m and coarse powder with average grain size of 75 to 250 $\mu$ m, and they are mixed at 5 to 30wt.% and 70 to 95wt.% together. After they are subject to orientation of magnetic field, they are compressed and molded while they are energized so as to bulk them, and as a result, an anisotropic permanent magnet having both high magnetic characteristic and excellent temperature dependency can be produced easily.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-172850

(43) 公開日 平成10年(1998) 6月26日

(51) IntCl <sup>4</sup>	識別記号	F I	G
H 0 1 F 41/02		H 0 1 F 41/02	
C 2 2 C 38/00	3 0 3	C 2 2 C 38/00	3 0 3 D
H 0 1 F 1/053		H 0 1 F 1/04	H
1/06		1/06	A
1/08		1/08	A
審査請求 未請求 請求項の数 4 F D (全 8 頁)			

(21) 出願番号 特願平8-352365

(22) 出願日 平成8年(1996)12月11日

(71) 出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72) 発明者 池上 尚

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住  
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72) 発明者 広沢 哲

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住  
友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74) 代理人 弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 異方性永久磁石の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 高い磁気特性が得られるR-T-M-B系永久磁石を製造する方法を目的にR-T-M-B系磁石粉末の直接バルク化を図ることと高性能化が可能な異方性磁石粉末を使用して、高い磁気特性と良好な温度依存性を両立した異方性永久磁石の製造方法の提供。

【解決手段】 R-T-(M)-B系永久磁石を製造する方法において、水素処理法によって得られた磁氣的異方性を有する磁石粉末を平均粒度10 $\mu$ m~40 $\mu$ mの微粉碎粉と平均粒度75 $\mu$ m~250 $\mu$ mの粗粉碎粉に粉碎後、前記微粉碎粉と粗粉碎粉をそれぞれ5~30重量%と70~95重量%混合し、ついで磁界配向した後、に圧縮圧縮成型する際に直接通電を行ってバルク化することによって、高い磁気特性と良好な温度依存性を両立した異方性永久磁石を容易に製造することができる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 R: 10~20at% (R: Yを含む希土類元素の少なくとも1種で、PrまたはNdの1種または2種をRのうち50at%以上含有)、T: 67~85at% (T: FeまたはFeの一部を50at%以下のCoで置換)、M: 0.05~10at% (M: Al, Ti, V, Cr, Ni, Ga, Zr, Nb, Mo, In, Sn, Hf, Ta, W, Cu)、B: 4~10at%からなる合金鋳塊を粗粉碎して平均粒度が50 $\mu$ m~5000 $\mu$ mの、少なくとも80vol%以上が正方晶構造Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物からなる粗粉碎粉となした後、水素処理をして、得られる平均結晶粒径が0.05 $\mu$ m~1 $\mu$ mである磁氣的に異方性を持つ再結晶集合組織からなる合金粉末に調整した後、これを粉碎して平均粒度10 $\mu$ m~40 $\mu$ mの微粉碎粉と平均粒度75 $\mu$ m~250 $\mu$ mの粗粉碎粉とし、微粉碎粉5~30重量%と粗粉碎粉70~95重量%とを混合し、次いで磁界配向した後に圧縮成型と直接通電によってバルク化する異方性永久磁石の製造方法。

【請求項2】 請求項1において、10kPa~1000kPaのH<sub>2</sub>ガス中で、600℃~750℃の温度域を昇温速度10℃/min~200℃/minで昇温し、さらに750℃~900℃に15分~8時間加熱保持する条件で、組織をR水素化合物、T-B化合物、T相、R<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B化合物の少なくとも4相の混合組織とした水素不均化処理を行った後、さらにArガスまたはHeガスによる絶対圧10Pa~50kPaの減圧気流中にて700℃~900℃に5分~8時間の保持をする脱H<sub>2</sub>処理を行う水素処理をすることを特徴とする異方性永久磁石の製造方法。

【請求項3】 請求項1または請求項2において、圧縮処理時の圧縮圧力と直接通電によって成形する際に直接通電の通電方向を圧縮圧力と平行とすることを特徴とする異方性永久磁石の製造方法。

【請求項4】 請求項1または請求項2において、圧縮成型時の圧縮圧力と直接通電によって成形する際に直接通電の通電方向を圧縮圧力と垂直とすることを特徴とする異方性永久磁石の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、各種モーター、アクチュエーター等に用いることが可能なR(希土類元素)-T(鉄属元素)-M-B系の異方性永久磁石に係り、R-T-M-B系合金鋳塊を粗粉碎し、さらに水素処理にて得られた再結晶集合組織からなる合金粉末を粉碎し、得られた微粉碎粉と粗粉碎粉を所定比で混合し、磁界配向した後、圧縮成型する際に直接通電を行うことによってバルク化することにより、高い磁気特性を得た異方性永久磁石の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】R-T-B系磁石粉末をバルク化する方法としては、樹脂などの異種材料をバインダーとして使用し任意の形状に成形する、ボンド磁石として発展した。このボンド磁石の製造方法は、R-T-B系原料母合金をメルトスパンすることによって得られる等方性の粉末を樹脂バインダーと混合し、成形したものである。このようなR-T-B系の等方性のボンド磁石は磁気特性は低い、様々な形状、特にラジアルリングなどの薄肉品などに対応できる上、比較的容易に製造でき、成形後加工する必要がない(ネットシェイプ成形)という利点がある。

【0003】R-T-B系等方性のボンド磁石は、種々の形状に容易に対応できるという特色のために年々製造量が増え、いろいろな用途や品種に用いられている。このR-T-B系等方性のボンド磁石の磁気特性を向上させる方法としては、例えば、特開平3-284002号公報や特公平4-40842号公報に開示されるように、粒度分布を2 $\mu$ m~500 $\mu$ mもしくは10 $\mu$ m~500 $\mu$ mに調整し、ボンド磁石の密度を向上させることが提案されている。

【0004】また、さらなる磁気特性の向上を求めようとすると、例えば、特開平4-33307号公報、特開平4-63402号公報や特開平7-307211号公報に開示されているように、前記メルトスパン粉末を熱間加工によって塑性変形させて磁氣的異方性を付与し、そのまま目的の形状にネットシェイプ成形する方法がある。この方法により、樹脂バインダーなどの異種材料を含まない、密度の高いバルク体を得ることができる。

【0005】また、上記方法においてメルトスパン粉末ではなく水素処理法によって磁氣的異方性を有する磁石粉末を製造し、この異方性磁石粉末を成形する方法が、特開平4-247604号公報や特開平6-196344号公報に開示されている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】先に挙げたような磁石粉末をバルク化する方法のうち、従来のメルトスパン粉末を樹脂バインダーでバルク化したボンド磁石では、磁石粉末の粒度を2 $\mu$ m~500 $\mu$ mもしくは10 $\mu$ m~500 $\mu$ mの前記粒度分布に調整しても、得られる最大エネルギー積はたかだか70~80kJ/m<sup>3</sup>の磁気特性であり、必要十分な磁気特性が得られないという問題があった。

【0007】そこで磁気特性を向上させる方法としては、磁氣的異方性を付与する方法がある。すなわち、メルトスパン粉末を熱間で加工し、塑性変形させると磁氣的異方性を有するバルクができる。このような方法で得られたバルクは300kJ/m<sup>3</sup>程度の高い最大エネルギー積が得られるが、塑性変形時にバルク内の結晶粒子の形状が大きく変化し偏平な形状になるために、磁気特性の温度依存性が大きくなり、常温以上ですぐに減磁

し、実用に適さないという問題があった。

【0008】温度依存性の問題に対応する方法としては、水素処理を行った磁氣的異方性を有する磁石粉末を用いる方法がある。原料磁石粉末として、初めから磁氣的異方性を持った粉末を用いて成形すると、塑性変形させて異方性を付与する必要がないために、粒子形状をほとんど変化させずにバルクとすることができる。しかし、特開平4-247604号公報に示されるごとく、磁石粉末の成形をホットプレスで行うと、製造時間が非常に長くなるためにコストが高くなってしまいう問題があった。

【0009】製造時間を短縮するには、磁石粉末に直接通電してジュール熱を発生させて数十秒で成型する方法が特開平6-196344号公報に開示されている。しかしながら、成形加工するためのダイが適当な導電性を有する必要があるために、ダイの強度が低く、50MPa程度までしか成形圧力を大きくできない問題があった。また、成形圧力をやみくもに大きくしても異方性磁石粉末を用いた場合、成形後の配向が乱れ、高い密度のバルクが得られても結果として磁気特性が低くなってしまいう問題があった。

【0010】このように、水素処理によって得られた磁氣的異方性を有する磁石粉末を圧縮圧力と直接通電によって成形する場合、低い密度によって生じるバルク内の空間を埋め、高密度化する方法として、等方性のメルトスパン粉体等の充填材を予め粉末に混合する方法がある。このような充填材を混合して圧縮圧力と直接通電によって成形すると、 $7.5 \text{ g/cm}^3$ 程度の高い密度が得られるが、等方性の粉末を混ぜるために、磁気特性としては低く、 $140 \text{ kJ/m}^3$ 程度の最大エネルギー積しか得られないという欠点があった。

【0011】この発明は、高い磁気特性が得られるR-T-M-B系永久磁石を製造する方法を目的にR-T-M-B系磁石粉末の直接バルク化を図ることと高性能化が可能な異方性磁石粉末を使用することを想定し、前述の多くの技術的な問題を解消でき、製造性よく、高い磁気特性と良好な温度依存性を両立したネットシェイプ異方性永久磁石の製造方法の提供を目的としている。

#### 【0012】

【課題を解決するための手段】発明者らは、高い磁気特性と良好な温度依存性を両立させるために、原料磁石粉末として、水素処理によって得られた再結晶集合組織からなる磁氣的異方性を有する磁石粉末を使用し、さらに高い磁気特性を得るために圧縮圧力と同時に直接通電による成形方法を選択した。

【0013】発明者らは、一方、低い成形圧力で異方性の磁石粉末を高密度化する方法を種々検討した結果、使用する異方性の磁石粉末の粒度分布として、平均粒度の異なる粗粉碎粉と微粉碎粉を混合することで高密度化でき、さらに水素処理の脱水素条件によって磁石粉末の保

磁力を制御できることを知見し、微粉碎粉と粗粉碎粉の保磁力を水素処理の脱水素条件によってそれぞれ0.65MA/m以下と0.80MA/m以上とすることで成形時の配向の乱れが最小限に抑制できることを知見し、この発明を完成した。

【0014】さらに、発明者らは、直接通電の通電方向においては、バルクの形状によって変えた方が電極面積を大きくでき、例えば薄い板状のバルクを得る場合には、成形圧力と平行方向、リング状のバルクなどでは成形圧力に垂直な方向が有利であることを知見した。

【0015】すなわち、この発明は、R:10~20at% (R:Yを含む希土類元素の少なくとも1種で、PrまたはNdの1種または2種をRのうち50at%以上含有)、T:67~85at% (T:FeまたはFeの一部を50at%以下のCoで置換)、M:0.05~10at% (M:Al, Ti, V, Cr, Ni, Ga, Zr, Nb, Mo, In, Sn, Hf, Ta, W, Cu)、B:4~10at%からなる合金錠塊を粗粉碎して平均粒度が $50 \mu\text{m}$ ~ $5000 \mu\text{m}$ の、少なくとも80vol%以上が正方晶構造 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物からなる粗粉碎粉となした後、水素処理をして、得られる平均結晶粒径が $0.05 \mu\text{m}$ ~ $1 \mu\text{m}$ である磁氣的に異方性を持つ再結晶集合組織からなる合金粉末に調整した後、これを粉碎して平均粒度 $10 \mu\text{m}$ ~ $40 \mu\text{m}$ の微粉碎粉と平均粒度 $75 \mu\text{m}$ ~ $250 \mu\text{m}$ の粗粉碎粉とし、微粉碎粉5~30重量%と粗粉碎粉70~95重量%とを混合し、次いで磁界配向した後に圧縮成型と直接通電によってバルク化する異方性永久磁石の製造方法である。

【0016】また、この発明は、前記水素処理において、 $10 \text{ kPa}$ ~ $1000 \text{ kPa}$ の $\text{H}_2$ ガス中で、 $600^\circ\text{C}$ ~ $750^\circ\text{C}$ の温度域を昇温速度 $10^\circ\text{C/min}$ ~ $200^\circ\text{C/min}$ で昇温し、さらに $750^\circ\text{C}$ ~ $900^\circ\text{C}$ に15分~8時間加熱保持する条件で、組織をR水素化合物、T-B化合物、T相、 $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$ 化合物の少なくとも4相の混合組織とした水素不均化処理を行った後、さらにArガスまたはHeガスによる絶対圧 $10 \text{ Pa}$ ~ $50 \text{ kPa}$ の減圧気流中にて $700^\circ\text{C}$ ~ $900^\circ\text{C}$ に5分~8時間の保持をする脱 $\text{H}_2$ 処理を行う水素処理することを特徴とする異方性永久磁石の製造方法である。

【0017】また、この発明は、上記の製造方法において、圧縮圧力と直接通電によって成形する際に直接通電の通電方向を圧縮圧力と平行あるいは垂直とすることを特徴とする異方性永久磁石の製造方法である。

#### 【0018】

##### 【発明の実施の形態】

##### 組成の限定理由

この発明に使用する原料合金に用いるRすなわち希土類元素Rは、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Luが包括され、この

うち少なくとも1種以上で、Pr、Ndのうち少なくとも1種または2種をRのうち50at%以上含有し、さらにRの全てがPr、Ndのうち1種または2種の場合がある。Rの50at%以上をPr、Ndのうち少なくとも1種以上とするのは、50at%未満では十分な磁化が得られないためである。

【0019】Rは、10at%未満では $\alpha$ Fe相の析出により保磁力が低下し、また20at%を超えると目的とする正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物以外に、Rリッチの第2相が多く析出し、この第2相が多すぎると合金の磁化を低下させる。従って、Rの範囲は10~20at%とする。

【0020】Tは鉄属元素であって、Fe、Coを包含する。Tが67at%未満では低保磁力、低磁化の第2相が析出して磁気的特性が低下し、また85at%を超えると $\alpha$ Fe相の析出により保磁力、角型性が低下するため、Tは67~85at%とする。

【0021】また、Feのみでも必要な磁気的性質は得られるが、Coの適量の添加は、キュリー温度の向上に有用であり、Coは必要に応じて添加できる。FeとCoの原子比においてFeが50%以下となると、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物の飽和磁化そのものの減少量が大きくなってしまいうため、Tのうち原子比でFeを50%以上とした。

【0022】添加元素Mの効果は、水素不均化時に母相の分解反応を完全に終了させずに、母相、すなわちR<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B相を安定化して故意に残存させるのに有効な元素が望まれる。特に顕著な効果を持つものとして、Ni、Ga、Zr、Hfがある。

【0023】また、Mのうち、Al、Ni、Ga、Zr、In、Sn、Hfは、脱H<sub>2</sub>処理時の再結晶粒を0.1 $\mu$ m~1 $\mu$ mのサイズにまで成長させ、粉末に磁気異方性を付与するのに有用な元素である。さらに、Ti、V、Cr、Nb、Mo、Ta、W、Cuは、脱H<sub>2</sub>処理時の再結晶粒が、1 $\mu$ m以上に粗大化するのを防止し、結果として保磁力が低下するのを抑制する効果を有する。

【0024】従って、Mとしては、上記の元素を目的に応じて組み合わせて用いることが得策である。添加量は、0.05at%未満では添加量が少なすぎて効果がなく、また10at%を超えると強磁性でない第2相が析出して磁化を低下させることから、Mは0.05at%以上10at%以下とした。

【0025】Bは、正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型結晶構造を安定して析出させるために必須の元素である。添加量は4at%以下では、R<sub>2</sub>T<sub>17</sub>相が析出して保磁力を低下させ、また減磁曲線の角型性が著しく損なわれる。また、10at%を超えて添加した場合は、磁化の小さい第2相が析出して粉末の磁化を低下させる。従って、Bは4~10at%とした。

【0026】体積比で80%以上の正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物を有する粗粉碎を得るためには、合金の鋳塊を900℃~1200℃の温度で1時間以上焼鈍するか、造塊工程で鋳型の冷却速度を制御するなどの方法を適宜選定すると良い。

【0027】製造条件の限定理由

水素処理法は、所要粒度の粗粉碎粉が外観上その大きさを変化させることなく、極微細結晶組織の集合体を得られることを特徴とする。すなわち、正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物に対し、高温、実際上は600℃~900℃の温度範囲でH<sub>2</sub>ガスと反応させる水素不均化処理によって、RH<sub>2</sub>■<sub>3</sub>、 $\alpha$ Fe、Fe<sub>2</sub>Bなどに相分離し、さらに同温度域でH<sub>2</sub>ガスを脱H<sub>2</sub>処理により除去すると、再度正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物の再結晶組織が得られる。

【0028】しかしながら、現実には、水素不均化処理条件によって分解生成物の結晶粒径、反応の度合いが異なり、水素不均化状態の金属組織は、水素不均化温度750℃未満と750℃以上とで明らかに異なる。この金属組織上の違いが、脱水素処理を行った後の磁粉の磁気的性質に大きく影響する。

【0029】さらに、脱水素化処理条件によって、正方晶Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B型化合物の再結晶状態が大きく影響を受け、水素処理法によって作製した磁性粉の磁気的性質、特に保磁力に大きく影響する。逆に、脱水素化処理条件を選択することによって、磁気特性を制御できる。

【0030】出発原料の粗粉碎法は、従来の機械的粉碎法やガスアトマイズ法の他、H<sub>2</sub>吸蔵による、いわゆる水素粉碎法を用いてもよく、工程の簡略化のためにこの水素粉碎による粗粉碎工程と、極微細結晶を得るための水素処理法を同一装置内で連続して行っても良い。

【0031】この発明において、粗粉碎粉の平均粒度を50 $\mu$ m~5000 $\mu$ mに限定したのは、50 $\mu$ m未満では粉末の酸化による磁性劣化の恐れがあり、また5000 $\mu$ mを超えると水素処理によって大きな磁気異方性を持たせることが困難となるからである。

【0032】この発明において、H<sub>2</sub>ガス中での加熱に際し、H<sub>2</sub>ガス圧力が10kPa未満では前述の分解反応が十分に進行せず、また1000kPaを超えると処理設備が大きくなりすぎ、工業的にコスト面、また安全面で好ましくないため、圧力範囲を10~1000kPaとした。さらに好ましい圧力範囲は50~150kPaである。

【0033】H<sub>2</sub>ガス中での加熱処理温度は、600℃未満ではRH<sub>2</sub>■<sub>3</sub>、 $\alpha$ Fe、Fe<sub>2</sub>Bなどへの分解反応が起こらない。また、600℃~750℃の温度範囲では分解反応がほぼ完全に進行してしまい、分解生成物中に適量のR<sub>2</sub>T<sub>14</sub>B相が残存せず、脱水素処理後に磁気的、また結晶方位的に充分な異方性が得られない。また900℃を超えるとRH<sub>2</sub>■<sub>3</sub>が不安定となり、かつ生成

物が粒成長して正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物極微細結晶組織を得ることが困難になる。

【0034】水素不均化の温度範囲が $750^\circ\text{C}\sim 900^\circ\text{C}$ の領域であれば、脱水素時の再結晶反応の核となる $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$ 相によって決定され、結果的に再結晶組織の結晶方位が原料インゴットの結晶方位と一致し、少なくとも原料インゴットの結晶粒径の範囲内では大きな異方性を示すことになる。従って、水素不均化処理の温度範囲を $750\sim 900^\circ\text{C}$ とする。

【0035】また、加熱処理時の保持時間については、上記の分解反応を充分に行わせるためには15分以上必要であり、また、8時間を超えると残存 $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$ 相が減少するため、脱水素後の異方性が低下するので好ましくない、よって、15分～8時間の加熱保持とする。

【0036】 $\text{H}_2$ ガス中での昇温速度を所定範囲に保持することはこの発明において最も重要な工程である。すなわち、昇温速度が $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 未満であると、昇温過程で $600^\circ\text{C}\sim 750^\circ\text{C}$ の温度域を分解反応が進行しながら通過するために、完全に分解して母相すなわち $\text{R}_2\text{T}_{14}\text{B}$ 相が残存せず、脱水素処理後の磁氣的及び結晶方位的異方性がほとんど失われてしまう。また、多量に処理を行う場合は、大きな反応熱のために局部的に最適処理温度範囲を超える場合があり、そのために実用的な保磁力が得られない場合がある。

【0037】かかる昇温速度を $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 以上にすれば、 $600^\circ\text{C}\sim 750^\circ\text{C}$ の領域で反応が充分に進行せず、母相を残存したまま $750^\circ\text{C}\sim 900^\circ\text{C}$ の水素不均化温度域に達するため、脱水素処理後に磁氣のおよび結晶方位的に大きな異方性を持った粉末を得ることができる。また、 $750^\circ\text{C}\sim 900^\circ\text{C}$ の温度域における分解反応時の反応熱による温度上昇は小さく、多量処理時でも実用的な保磁力が得易い。従って、昇温速度は、 $750^\circ\text{C}$ 以下の温度域において、 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 以上とする必要がある。

【0038】また、 $200^\circ\text{C}/\text{min}$ を越える昇温速度は、赤外線加熱炉等を用いても実質的に実現困難であり、また可能であっても設備費が過大となるので好ましくない、よって、昇温速度を $10^\circ\text{C}/\text{min}\sim 200^\circ\text{C}/\text{min}$ とする。

【0039】この発明の脱 $\text{H}_2$ 処理は、 $\text{Ar}$ ガス又は $\text{He}$ ガスの減圧気流中に行うが、これによって原料の周囲の実質的な $\text{H}_2$ 分圧を $\text{R}$ 水素化合物の平衡水素解離圧、例えば $\text{NdH}_2$ では $850^\circ\text{C}$ で $1\text{ kPa}$ 程度となり、脱 $\text{H}_2$ 反応は徐々に進行する。

【0040】雰囲気ガスを $\text{Ar}$ ガス又は $\text{He}$ ガスに限定したのは、コスト面で $\text{Ar}$ ガスが使いよく、また $\text{H}_2$ ガスの置換性や温度制御の点から $\text{He}$ ガスが使いよいことによる。さらに、不活性ガスとして一般的な $\text{N}_2$ ガスは希土類系化合物と反応して窒化物を形成するため不適当であり、また他の希ガスでは性能上のメリットがなくコスト

の面でも不利である。

【0041】この発明の脱 $\text{H}_2$ 処理時の雰囲気ガスの絶対圧は、 $10\text{ Pa}$ 未満では脱 $\text{H}_2$ 反応が急激に起こり、化学反応による温度が大きく低下し、さらに脱 $\text{H}_2$ 反応が急激すぎるために冷却後の磁性粉の組織に粗大な結晶粒が混在して保磁力が大きく低下するため好ましくなく、また $50\text{ kPa}$ を超えると、脱 $\text{H}_2$ 反応に時間がかかりすぎて実用上問題となるため、絶対圧 $10\text{ Pa}\sim 50\text{ kPa}$ の範囲とする。この範囲で圧力を選択してやると保磁力を制御することができる。

【0042】また、脱 $\text{H}_2$ 処理を減圧分流中で行うのは脱 $\text{H}_2$ 反応によって、原料から放出される $\text{H}_2$ ガスによって、炉内圧力が上昇するのを防止するためである。実用上は、一方から不活性ガスを導入しながら真空ポンプで排気し、圧力の制御は、供給口、排気口のそれぞれに取り付けられた流量調節弁を用いて行うとよい。

【0043】この発明において、脱 $\text{H}_2$ 処理の温度が $700^\circ\text{C}$ 未満では、 $\text{RH}_2\text{m}$ 相からの $\text{H}_2$ の離脱が起こらないか、正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物の再結晶が充分進行しない。また、 $900^\circ\text{C}$ を超えると正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物は生成するが、再結晶粒が粗大に成長し、高い保磁力が得られない。そのため、脱 $\text{H}_2$ 処理の温度範囲は $700^\circ\text{C}\sim 900^\circ\text{C}$ とする。

【0044】また、加熱処理保持時間は、処理設備の排気能力にもよるが、上記の再結晶反応を充分に行わせることも重要であり、少なくとも5分以上保持する必要があるが、2次的な再結晶反応によって結晶が粗大化すれば保磁力の低下を招くので、できる限り短時間の方が好ましい。そのため、5分～8時間の加熱保持で充分である。

【0045】脱 $\text{H}_2$ 処理は、原料の酸化防止の観点から、また処理設備の熱効率の観点で、水素化処理に引き続いて行うのがよいが、水素化処理後、一旦原料を冷却して、再び改めて脱 $\text{H}_2$ のための熱処理を行っても良い。

【0046】脱 $\text{H}_2$ 処理後の正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型化合物の再結晶粒径は実質的に $0.05\mu\text{m}$ 以下の平均再結晶粒径を得ることは困難であり、また、たとえ得られたとしても磁気特性上の利点がない。一方、平均再結晶粒径が $1\mu\text{m}$ を超えると、粉末の保磁力が低下するため好ましくない。そのため、平均再結晶粒径を $0.05\mu\text{m}\sim 1\mu\text{m}$ とした。

【0047】水素処理によって得られた粉末を粉砕する方法としては、通常の機械粉砕法あるいは水素を吸蔵させ、自然崩壊させる粉砕方法でもよい。バルクを成形するための粉末の粒度分布は、粗い粉末が作る隙間を細かい粉末が埋めるようにこの発明では、平均粒度 $10\mu\text{m}\sim 40\mu\text{m}$ の微粉砕粉を $5\sim 30$ 重量%と、平均粒度 $75\mu\text{m}\sim 250\mu\text{m}$ の粗粉砕粉を $70\sim 95$ 重量%混合したものとする。

【0048】微粉碎粉の平均粒度を $10\mu\text{m}$ ～ $40\mu\text{m}$ としたのは、平均粒度が $10\mu\text{m}$ 未満では粒度が細かすぎるために、粉末が自身の表面エネルギーを減少させようとして微粉碎粉同士が凝集し、密度の低い凝集粒子を形成してしまうからである。また、平均粒度が $40\mu\text{m}$ を超えると微粉碎粉として粗粉碎粉の隙間に入らなくなるために $40\mu\text{m}$ 以下とした。

【0049】粗粉碎粉の平均粒度を $75\mu\text{m}$ ～ $250\mu\text{m}$ としたのは、平均粒度が $75\mu\text{m}$ 未満では平均粒度 $10\mu\text{m}$ 以上の微粉碎粉が入る隙間が極端に少なくなり、微粉碎粉を混合する意味がない。また、平均粒度が $250\mu\text{m}$ を超えると、小型磁気部品として精密成形する際に大きすぎて好ましくないからである。

【0050】粉末の混合比において、微粉碎粉を5～30重量%、粗粉碎粉を70～95重量%としたのは、微粉碎粉が5%未満すなわち粗粉碎粉が95%を超えると粗粉碎粉の隙間に入る量が少ないために成形時の密度が向上しない。また、微粉碎粉が30重量%を超える、すなわち粗粉碎粉が70%未満では、微粉碎粉が粗粉碎粉の隙間に入る量より多くなるために微粉碎粉を30重量%以上入れても効果がない。よって微粉碎粉の混合比を5～30重量%、粗粉碎粉を70～95重量%とした。

【0051】また、粉末の磁気特性は特に限定しないが、微粉碎粉及び粗粉碎粉の保磁力を水素処理の脱水素条件によって、保磁力 $0.65\text{MA/m}$ 以下、及び $0.80\text{MA/m}$ 以上にすることにより、成形後の配向の乱れを最小限に抑制することができる。

【0052】バルクの製造方法の限定理由  
圧縮圧力と直接通電によるバルク化とは、通常の一軸プレスにおいて、導電性のパンチと非導電性のダイもしくは非導電性のパンチと導電性のダイによって構成され、粉体に直接通電することによってジュール熱を発生させ、温間成形するである。この方法では加熱に数十秒しかかからない上に、真密度に近い高い密度を得ることができ、製造上のメリットが大きい。また、パンチやダイの材質としては、電導部にはカーボンや電導粒子とサイアロンの複合材料などが、非電導材料にはサイアロン、サーメット、カーボンなどが挙げられる。

【0053】製造工程としては粒度調整をした異方性磁石粉末を上記パンチとダイに充填し、磁界配向した後、圧縮圧力をかけながら直接通電によって、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}$

B相の再結晶温度近傍の $700\sim 780^\circ\text{C}$ に加熱し成形する。この時の通電方向はバルクの形状に合わせて変えるのが好ましい。すなわち、薄い板状のバルクでは圧縮圧力と平行方向に、リング状のバルクでは圧縮圧力と垂直方向にするのが好ましい。また、必要に応じて低融点の金属などをバインダーとして加えても良いが、磁石粉末と反応して磁気特性が低下する恐れがあるために5重量%程度の極少量が好ましい。

【0054】

【実施例】

実施例1

高周波誘導溶解法によって溶製して得られた、表1に示すNo. 1～11の組成の鋳塊を、 $1100^\circ\text{C}$ 、24時間、Ar雰囲気中で焼鈍して、鋳塊中の正方晶 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}$ B型化合物の体積比を90%以上とした。

【0055】この鋳塊をAr雰囲気中( $\text{O}_2$ 量0.5%以下)でスタンプミルにて平均粒度 $200\mu\text{m}$ に粗粉碎した後、この粗粉碎粉を管状炉に入れ、 $1\text{Pa}$ 以下にまで真空排気した。その後、純度99.9999%以上の $\text{H}_2$ ガスを導入しつつ、表2に示す水素不均化処理条件で水素不均化処理を行った。こうして得た水素不均化原料を、引き続き表2に示す脱水素処理条件に従って脱水素処理を行った。排気には、ロータリーポンプを用いた。冷却後、原料温度が $50^\circ\text{C}$ 以下となったところで原料粉末を取り出した。

【0056】得られた原料粉末をArガス雰囲気中( $\text{O}_2$ 量0.5%以下)でスタンプミルにて粉碎し、平均粒度 $25\mu\text{m}$ の微粉碎粉と平均粒度 $150\mu\text{m}$ の粗粉碎粉を得、それぞれ10重量%と90重量%をV型混合器にて混合した。次にこの混合粉末をカーボン製のダイと導電性TiN-サイアロン複合材料のパンチに充填し $2.5\text{MA/m}$ のパルス磁界で配向した。

【0057】次に、パンチに $30\text{MPa}$ の圧力を加えながら電流密度 $3.0\sim 3.5\text{MA/m}^2$ で $30\text{sec}$ の直接通電を行い $750\sim 780^\circ\text{C}$ で圧縮加圧し、密度 $7.4\sim 7.6\text{g/cm}^3$ のバルク磁石を製造した。得られたバルク磁石の磁気特性をBHトレーサーで測定し、表2に示す。

【0058】

【表1】

単位: at%

No.	R			T		M	B
	Nd	Pr		Fe	Co		
1	1.3	11.0	Tb0.7	76.0	3.0	Al0.5, Mo1.0	6.5
2	12.0		Dy0.5	74.0	5.0	Ti1.0, Ni1.0	6.5
3		11.8	Dy0.7	74.5	5.0	V0.5, Ta1.0	6.5
4	10.7	2.0	Dy0.3	75.0	5.0	Cr0.6, In1.0	6.0
5	10.0	2.9	Tb0.1	75.5	5.0	Cu0.5	6.0
6	12.5			63.5	10.0	Nb5.7, Sn1.3	7.0
7	12.5			70.0	10.0	Ga0.8, Hf0.2	6.0
8	12.5			70.9	10.0	Ga0.6	6.0
9	12.5			65.5	15.0	Ga0.5, W0.5	6.0
10	10.0	3.0		65.3	15.0	Ga0.5, Zr0.2	6.0
11	10.0	3.0		69.9	10.0	Ga1.0, Zr0.1	6.0

【0059】

【表2】

No.	原料 No.	水素不均化条件			脱酸素条件			残留磁化 Br Tesla	保磁力 H <sub>cj</sub> MA/m	最大エネルギー積 (BH) <sub>max</sub> kJ/m <sup>3</sup>
		昇温速度	H <sub>2</sub> 分圧	処理温度、時間	処理温度、時間	絶対圧	雰囲気			
1	1	15℃/min	120kPa	750℃4時間	750℃10時間	10kPa	Ar	1.07	1.22	217
2	1	15℃/min	150kPa	780℃4時間	750℃1時間	10kPa	Ar	1.07	1.24	216
3	1	15℃/min	150kPa	760℃4時間	750℃1時間	10kPa	Ar	1.06	1.25	211
4	1	15℃/min	750kPa	830℃15分	750℃1時間	10kPa	Ar	1.08	1.18	219
5	2	50℃/min	200kPa	800℃2時間	820℃30分	100kPa	Ar	1.19	1.20	236
6	3	100℃/min	200kPa	800℃2時間	820℃1時間	1kPa	Ar	1.20	1.26	271
7	4	200℃/min	180kPa	820℃2時間	830℃1時間	10kPa	Ar	1.21	1.23	276
8	5	20℃/min	500kPa	850℃1時間	850℃1時間	10kPa	He	1.22	1.24	279
9	6	50℃/min	120kPa	830℃2時間	840℃30分	100kPa	He	1.18	0.95	263
10	7	25℃/min	100kPa	840℃1時間	820℃2時間	1kPa	Ar	1.22	0.94	278
11	7	25℃/min	100kPa	830℃1時間	820℃2時間	1kPa	Ar	1.20	0.95	269
12	7	25℃/min	100kPa	840℃1時間	820℃2時間	1kPa	Ar	1.21	0.98	275
13	8	10℃/min	50kPa	865℃2時間	810℃4時間	50kPa	He	1.23	0.88	286
14	8	30℃/min	70kPa	850℃3時間	870℃6時間	1kPa	Ar	1.21	0.99	276
15	10	25℃/min	80kPa	820℃3時間	830℃2時間	1kPa	Ar	1.25	0.95	284
16	11	25℃/min	100kPa	850℃2時間	830℃2時間	1kPa	Ar	1.23	0.95	284
17	11	25℃/min	90kPa	850℃2時間	830℃1時間	1kPa	Ar	1.23	0.95	284

## 【0060】実施例2

表1に示すNo. 11の組成を有する組成の平均粒度200μmの合金粉末を管状炉に入れ、1Pa以下にまで真空排気した。その後、純度99.9999%以上のH<sub>2</sub>ガスを導入しつつ、表2のNo. 19に示す処理条件で水素不均化処理および脱酸素処理を行った。冷却後、原料温度が50℃以下となったところで原料を取り出し

た。得られた原料は表3に示す平均粒度の粉末を表3に示す重量割合で混合した。次に実施例1と同様の方法でバルク磁石とし、その磁気特性をBHトレーサーで測定した。その結果を表3に示す。

【0061】

【表3】



No	原料 No.	微粉碎粉		粗粉碎粉		残留磁化 Br Tesla	保磁力 H <sub>cj</sub> MA/m	最大エネルギー積 (BH) <sub>max</sub> kJ/m <sup>3</sup>
		平均粒度/μm	重量%	平均粒度/μm	重量%			
20	11	15	8	80	92	1.18	0.95	262
21	11	15	10	80	90	1.20	0.95	271
22	11	20	10	80	90	1.21	0.96	276
23	11	25	10	150	90	1.23	0.95	284
24	11	25	25	150	75	1.22	0.94	280
25	11	25	25	200	80	1.23	0.95	286
26	11	30	28	200	72	1.22	0.94	278

## 【0062】比較例

表1に示すNo. 11の組成を有する平均粒度200μmの合金粉末を管状炉に入れ、1Pa以下にまで真空排気した。その後、純度99.9999%以上のH<sub>2</sub>ガスを導入しつつ、表2のNo. 19に示す処理条件で水素不均化処理および脱水素処理を行った。冷却後、原料温度が50℃以下となったところで原料を取り出した。得

られた原料は粉碎し表4に示す平均粒度とし、表4に示す重量割合で混合した。次に実施例1と同様の方法でバルク磁石とし、その磁気特性をBHトレーサーで測定した。その結果を表4に示す。

## 【0063】

## 【表4】

No	原料 No.	微粉碎粉		粗粉碎粉		残留磁化 Br Tesla	保磁力 H <sub>cj</sub> MA/m	最大エネルギー積 (BH) <sub>max</sub> kJ/m <sup>3</sup>
		平均粒度/μm	重量%	平均粒度/μm	重量%			
27	11	-	0	80	100	1.02	0.95	210
28	11	15	50	80	50	0.85	0.94	150
29	11	20	80	80	20	0.78	0.97	118
30	11	20	10	150	90	1.03	0.95	218

## 【0064】

【発明の効果】この発明は、R-T-(M)-B系永久磁石を製造する方法において、水素処理法によって得られた磁氣的異方性を有する磁石粉末を平均粒度10μm～40μmの微粉碎粉と平均粒度75μm～250μmの粗粉碎粉に粉碎後、前記微粉碎粉と粗粉碎粉をそれぞ

れ5～30重量%と70～95重量%混合し、ついで磁界配向した後に圧縮圧縮成型する際に直接通電を行ってバルク化することによって、高い磁気特性と良好な温度依存性を両立した異方性永久磁石を容易に製造することができる。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**